

18 OCT 2004

PCT/JP03/07689

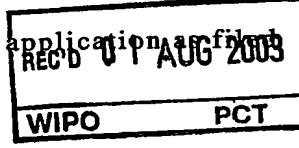
10/511470

17.06.03

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application filed
with this Office.



出願年月日
Date of Application: 2002年 7月19日

出願番号
Application Number: 特願2002-210585
[ST. 10/C]: [JP2002-210585]

出願人
Applicant(s): 三浦工業株式会社
大阪瓦斯株式会社

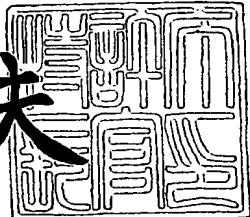
PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

BEST AVAILABLE COPY

2003年 7月18日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願
【整理番号】 P02-000032
【提出日】 平成14年 7月19日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 G01N 1/02
【発明者】
【住所又は居所】 愛媛県松山市堀江町7番地 三浦工業株式会社内
【氏名】 本田 克久
【発明者】
【住所又は居所】 愛媛県松山市堀江町7番地 三浦工業株式会社内
【氏名】 ▲浜▼田 典明
【発明者】
【住所又は居所】 愛媛県松山市堀江町7番地 三浦工業株式会社内
【氏名】 中村 裕史
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号 大阪瓦斯株式会社内
【氏名】 松井 久次
【発明者】
【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号 大阪瓦斯株式会社内
【氏名】 小林 清孝
【特許出願人】
【識別番号】 000175272
【氏名又は名称】 三浦工業株式会社
【代表者】 白石 省三

【特許出願人】**【識別番号】** 000000284**【氏名又は名称】** 大阪瓦斯株式会社**【代表者】** 野村 明雄**【代理人】****【識別番号】** 100099841**【弁理士】****【氏名又は名称】** 市川 恒彦**【手数料の表示】****【予納台帳番号】** 056421**【納付金額】** 21,000円**【提出物件の目録】****【物件名】** 明細書 1**【物件名】** 図面 1**【物件名】** 要約書 1**【包括委任状番号】** 9707808**【プルーフの要否】** 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 塩素化有機化合物の採取用フィルターおよびその製造方法、塩素化有機化合物の採取器並びに塩素化有機化合物の採取方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

流体中に含まれる塩素化有機化合物を前記流体から取り除いて採取するためのフィルターであつて、

纖維材料と、前記纖維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む流体通過性の成形体と、

前記成形体に保持された、前記塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料と、

を備えた塩素化有機化合物の採取用フィルター。

【請求項 2】

前記纖維材料がガラス纖維、アルミナ纖維およびシリカ纖維からなる群から選択された少なくとも 1 種である、請求項 1 に記載の塩素化有機化合物の採取用フィルター。

【請求項 3】

前記無機系結合材が前記塩素化有機化合物の吸着性を有している、請求項 1 または 2 に記載の塩素化有機化合物の採取用フィルター。

【請求項 4】

前記無機系結合材がアルミナ、ゼオライトおよび二酸化ケイ素からなる群から選択された少なくとも 1 種である、請求項 3 に記載の塩素化有機化合物の採取用フィルター。

【請求項 5】

前記疎水性材料が、活性炭、グラファイトおよびスチレン-ジビニルベンゼン共重合体からなる群から選択された少なくとも 1 種である、請求項 1、2、3 または 4 に記載の塩素化有機化合物の採取用フィルター。

【請求項 6】

前記疎水性材料が、前記成形体の 0.01 ~ 10.0 重量% 保持されている、

請求項1、2、3、4または5に記載の塩素化有機化合物の採取用フィルター。

【請求項7】

前記繊維材料が活性アルミナ繊維であり、前記無機系結合材が粒子状の活性アルミナであり、前記疎水性材料が粉末状活性炭である、請求項1または6に記載の塩素化有機化合物の採取用フィルター。

【請求項8】

流体中に含まれる塩素化有機化合物を前記流体から取り除いて採取するためのフィルターを製造するための方法であって、

繊維材料と、前記繊維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む成形材料を調製する工程と、

前記成形材料を所定の形状に成形した後に焼結して成形体を得る工程と、

前記成形体に対し、前記塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料を保持させる工程と、

を含む塩素化有機化合物の採取用フィルターの製造方法。

【請求項9】

前記成形体に対して前記疎水性材料を保持させる工程の前に、前記成形体を、前記無機系結合材の水系分散液中に浸漬した後に乾燥する工程をさらに含む、請求項8に記載の塩素化有機化合物の採取用フィルターの製造方法。

【請求項10】

輸送管内を流れる流体中に含まれる塩素化有機化合物を採取するための採取器であって、

前記輸送管からの前記流体を通過させるための、流体通過性を有するフィルターと、

前記フィルターを収容しつつ前記フィルターを通過した前記流体を外部に排出するための排出口を有する容器とを備え、

前記フィルターは、繊維材料と、前記繊維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む成形体と、前記成形体に保持された、前記塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料とを備えている、

塩素化有機化合物の採取器。

【請求項 11】

前記フィルターは、一端に前記輸送管を挿入するための開口部を有しつつ他端が閉鎖された円筒状である、請求項10に記載の塩素化有機化合物の採取器。

【請求項 12】

輸送管内を流れる流体中に含まれる塩素化有機化合物を採取するための方法であって、

繊維材料と、前記繊維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む流体通過性の成形体と、前記成形体に保持された、前記塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料とを備えたフィルターに、前記輸送管からの前記流体を通過させる工程を含む、

塩素化有機化合物の採取方法。

【発明の詳細な説明】**【0001】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、採取用フィルター、特に、塩素化有機化合物の採取用フィルターに関する。

【0002】**【従来の技術とその課題】**

産業廃棄物や一般家庭ごみなどの廃棄物を焼却処理するための焼却施設から発生する排気ガス中には、ダイオキシン類、コプラナーP C B をはじめとするポリクロロビフェニル類、クロロフェノールおよびクロロベンゼンなどの各種の塩素化有機化合物が含まれている。

【0003】

ここで、ダイオキシン類は、ポリ塩化ジベンゾ・パラ・ダイオキシン類（P C D D s）やポリ塩化ジベンゾフラン類（P C D F s）等の総称であり、周知の如く極めて毒性の強い環境汚染物質であるが、その中でも四塩化ジベンゾダイオキシン（T₄C D D s）は特に最強の毒性物質として知られている。また、ポリクロロビフェニル類は、同様に毒性の強い環境汚染物質であるが、その中でも、コプラナーP C B （C o - P C B s）はダイオキシン類と同じく最強の毒性物質と

して認知されている。一方、クロロフェノールやクロロベンゼンなどの塩素化有機化合物は、ダイオキシン類に比べて毒性は弱いが、一定の条件下、例えば、焼却炉内でフライアッシュ中に含まれる種々の元素を触媒として排気ガスの温度範囲でダイオキシン類に変化しやすいことが判明しているため、ダイオキシン類と同様に環境汚染物質として認識されている。このため、環境保全の観点から、上述のような各種の塩素化有機化合物を排気ガスや廃水などの流体中から除去するための方策の確立が緊急の課題となっており、同時にこのような流体中に含まれる塩素化有機化合物を分析するための手法の確立が世界的規模で急がれている。

【0004】

ところで、流体中に含まれる塩素化有機化合物を分析する際には、先ず、分析対象となる流体から精密かつ正確に試料入手する必要がある。例えば、排気ガス中に含まれる塩素化有機化合物を分析する場合は、排気ガスを含む空間、例えば排気ガスが流れる煙道から試料ガスを一定量採取し、この試料ガス中に含まれる各種の塩素化有機化合物を漏れなく確実に捕捉する必要がある。特に、上述のような環境汚染物質であるダイオキシン類やコプラナーP C Bは、試料ガス中に含まれる量が極めて微量であり、また、粒子状態やガス状態などの各種の形態であって種類も多岐に渡るため、その精密な採取を無くしては信頼性の高い分析結果は期待できない。また、上述のコプラナーP C Bは、大気中に多く含まれているため、そのようなコプラナーP C Bにより試料ガスが汚染されると、同じく信頼性の高い分析結果は期待できない。このため、我国、米国およびヨーロッパの各国は、分析結果の正確性を担保するために、例えば排気ガス中に含まれるダイオキシン類やコプラナーP C B等の塩素化有機化合物を分析するために必要な試料の採取方法を公的に規定しつつある。

【0005】

例えば、平成11年9月20日制定の日本工業規格J I S K 0311:1999は、「排ガス中のダイオキシン類及びコプラナーP C Bの測定方法」を規定しており、そこにおいてダイオキシン類などの塩素化有機化合物を含む試料ガスの採取装置を具体的に例示している。この採取装置は、焼却装置の排気ガスが流れる煙道から試料ガスを採取するための採取管、採取管により採取された試料

ガス中に含まれる主に粒子状態の塩素化有機化合物を捕捉するためのフィルター材を備えた第1捕捉器、および第1捕捉器で捕捉されにくいガス状態の塩素化有機化合物を捕捉するための第2捕捉器を主に備えている。ここで、第2捕捉器は、主に、吸収液を入れた複数のガラス製インピンジャーからなる液体捕集部と吸着剤（例えばXAD-2の商品名で市販されているスチレンジビニルベンゼン共重合体）を配置した吸着捕集部とを備え、第1捕捉器で捕捉されないガス状態の塩素化有機化合物をインピンジャー内の吸収液と吸着剤とにより捕捉し得るよう構成されている。

【0006】

このような採取装置は、第1捕捉器と第2捕捉器とを備えた複雑な構成を有し、しかもガラス製器具を多用していることから高価であるため、繰り返して利用する場合が多い。この場合、測定データの信頼性を確保するためにインピンジャーをはじめとする各部材を清浄に保つ必要があるので、試料ガスを採取する前の洗浄操作等の準備操作が非常に煩雑になる。また、試料ガス中に含まれるガス状態の塩素化有機化合物を第2捕捉器で捕捉する際には、第2捕捉器をドライアイス等の冷却材を用いて冷却する必要があり、試料の採取操作そのものも非常に煩雑になる。さらに、試料ガスの採取後においては、第1捕捉器および第2捕捉器により捕捉された塩素化有機化合物を抽出する必要があるが、ここでは第1捕捉器および構成が複雑な第2捕捉器によりそれぞれ捕捉された塩素化有機化合物を個別に抽出する必要があるため、抽出操作そのものが煩雑であって完了までに長時間を要し、また、抽出操作の巧拙により分析結果の信頼性が左右される場合も多い。さらに、この採取装置は、第1捕捉器および第2捕捉器の2種類の捕捉器からなるため必然的に大型化し、しかもガラス器具を多用していることから破損し易いので、試料ガス採取時の取扱いや運搬も困難である。

【0007】

一方、米国の環境保護庁(EPA)およびヨーロッパ規格委員会(CEN)もそれぞれ独自の公定法を定めているが、そこに示されている採取装置は、上述のような日本のものとは細部において異なるものの、構成の複雑さや取扱の困難性などの点においては大きな変わりはない。

【0008】

本発明の目的は、流体中に含まれる粒子状態およびガス状態の両方の形態の各種の塩素化有機化合物を同時に捕捉して採取し、しかも採取した塩素化有機化合物を容易に抽出できるようにすることにある。

【0009】**【課題を解決するための手段】**

本発明に係る塩素化有機化合物の採取用フィルターは、流体中に含まれる塩素化有機化合物を流体から取り除いて採取するためのものであり、纖維材料と、纖維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む流体通過性の成形体と、当該成形体に保持された、塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料とを備えている。

【0010】

本発明に係る塩素化有機化合物の採取用フィルターは、流体通過性の成形体に疎水性材料を保持させたものであるため、粒子状態およびガス状態の両方の形態のダイオキシン類やコプラナーPCBなどの各種の塩素化有機化合物を含む流体を通過させることができる。この際、流体中に含まれる上述の両方の形態の各種の塩素化有機化合物は、成形体に含まれる纖維材料および無機系結合材並びに成形体に保持された疎水性材料により同時に捕捉され、流体から取り除かれる。すなわち、流体中に含まれる塩素化有機化合物は、採取用フィルターにより採取されることになる。採取された塩素化有機化合物は、採取用フィルターに対して各種の抽出操作を適用すると抽出される。

【0011】

この採取用フィルターにおいて用いられる纖維材料は、例えば、ガラス纖維、アルミナ纖維およびシリカ纖維からなる群から選択された少なくとも1種である。無機系結合材は、例えば、塩素化有機化合物の吸着性を有している。このような無機系結合材は、例えば、アルミナ、ゼオライトおよび二酸化ケイ素からなる群から選択された少なくとも1種である。疎水性材料は、例えば、活性炭、グラファイトおよびスチレン-ジビニルベンゼン共重合体からなる群から選択された少なくとも1種である。この採取用フィルターにおいて、疎水性材料は、通常、

成形体の0.01～10.0重量%保持されている。

【0012】

なお、この採取用フィルターの好ましい形態のものは、例えば、繊維材料が活性アルミナ繊維であり、無機系結合材が粒子状の活性アルミナであり、疎水性材料が粉末状活性炭のものである。

【0013】

本発明に係る塩素化有機化合物の採取用フィルターの製造方法は、流体中に含まれる塩素化有機化合物を流体から取り除いて採取するためのフィルターを製造するための方法であり、繊維材料と、当該繊維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む成形材料を調製する工程と、成形材料を所定の形状に成形した後に焼結して成形体を得る工程と、成形体に対し、塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料を保持させる工程とを含んでいる。

【0014】

このような採取用フィルターの製造方法では、上述の成形材料を成形した後に焼結しているため、流体通過性を有する成形体を製造することができる。この成形体は、繊維材料と無機系結合材とを含み、しかも塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料を保持しているため、粒子状態およびガス状態の両方の形態のダイオキシン類やコプラナーP C Bなどの各種の塩素化有機化合物を含む流体が通過したときに、当該塩素化有機化合物を捕捉して流体から取り除くことができる。

【0015】

なお、この製造方法は、例えば、成形体に対して疎水性材料を保持させる工程の前に、成形体を、無機系結合材の水系分散液中に浸漬した後に乾燥する工程をさらに含んでいる。

【0016】

本発明の採取器は、輸送管内を流れる流体中に含まれる塩素化有機化合物を採取するためのものであり、輸送管からの流体を通過させるための、流体通過性を有するフィルターと、フィルターを収容しつつフィルターを通過した流体を外部に排出するための排出口を有する容器とを備えている。ここで、フィルターは、

繊維材料と、当該繊維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む成形体と、成形体に保持された、塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料とを備えている。

【0017】

本発明の採取器において、輸送管からの流体は、容器内のフィルターを通過した後、排出口から外部に排出される。この際、流体中に含まれる、粒子状態およびガス状態の両方の形態のダイオキシン類やコプラナーP C Bなどの各種の塩素化有機化合物は、成形体を構成する繊維材料および無機系結合材並びに成形体に保持された疎水性材料により同時に捕捉されて流体から取り除かれ、フィルターに採取される。フィルターに採取された各種の塩素化有機化合物は、当該フィルターに対して各種の抽出操作を適用すると抽出される。

【0018】

なお、この採取器において、フィルターは、例えば、一端に輸送管を挿入するための開口部を有しつつ他端が閉鎖された円筒状である。

【0019】

本発明に係る塩素化有機化合物の採取方法は、輸送管内を流れる流体中に含まれる塩素化有機化合物を採取するための方法であり、繊維材料と、当該繊維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む流体通過性の成形体と、成形体に保持された、塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料とを備えたフィルターに、輸送管からの流体を通過させる工程を含んでいる。

【0020】

このような塩素化有機化合物の採取方法は、上述の繊維材料と無機系結合材とを含む成形体と、この成形体に保持された疎水性材料とを備えたフィルターを用いているため、輸送管からの流体は、当該フィルターを通過する際、そこに含まれる粒子状態およびガス状態の両方の形態のダイオキシン類やコプラナーP C Bなどの各種の塩素化有機化合物がフィルターにより同時に捕捉されて採取される。フィルターにより採取された各種の塩素化有機化合物は、フィルターに対して各種の抽出操作を適用すると抽出される。

【0021】

【発明の実施の形態】

図1に、本発明に係る塩素化有機化合物の採取器の一形態が採用された塩素化有機化合物採取装置の概略構成を示す。この採取装置1は、流体のうち、排気ガスなどの試料流体（試料ガス）に含まれる塩素化有機化合物を採取するためのものである。図において、採取装置1は、採取管2、採取器3（本発明に係る採取器の一形態）および吸引器4を主に備えている。

【0022】

採取管2は、例えば、ほうけい酸ガラス製または透明石英ガラス製のものであり、その内部を通過する試料ガスを冷却するための冷却器5を有している。

【0023】

図2、図3（図2の縦断面図）および図4（図2のIV-IV断面図）を参照して、採取器3の詳細を説明する。図において、採取器3は、ホルダー（容器の一例）6、ホルダー6内に配置された、試料ガス中に含まれる塩素化有機化合物を捕捉して採取するための採取用フィルター7（本発明に係る塩素化有機化合物の採取用フィルターの一形態）、採取管2を経由して輸送される試料ガスを採取用フィルター7内に導入するための導入管8（輸送管の一例）および導入管8をホルダー6に対して装着するための装着体9を主に備えている。

【0024】

ホルダー6は、透明なガラスからなる概ね円筒状の容器であり、採取用フィルター7を収容可能な本体部10と、装着体9を装着するための装着部11と、試料ガスを排出するための排出部12とを主に有している。

装着部11は、本体部10の端部に一体に設けられており、直径が本体部10に比べて縮小されている。この装着部11は、外周面に螺旋溝11aが形成されており、また、端部に開口部11bを有している。

【0025】

排出部12は、本体部10の他方の端部に一体に設けられており、試料ガスを外部に排出するための排出路（排出口の一例）12aと分岐路12bとを有している。分岐路12bは、排出部12内を通過する試料ガスの温度を測定するための温度計や熱電対などの測温器27（図1）を排出部12内に挿入するためのも

のである。

【0026】

採取用フィルター7は、一端が閉鎖されかつ他端に試料ガスを導入するための開口部7aを有する円筒状の多孔質の成形体、すなわち多孔質の円筒状フィルターであり、開口部7a側が装着体9により支持されつつ、閉鎖端側が開口部11bからホルダー6の本体部10内に挿入されている。採取用フィルター7は、その大きさが特に限定されるものではないが、通常は長さ50～150mm、開口部7a側の端部の外径12～35mm、閉鎖端側の外径10～30mm、厚さ1～10mmに設定されており、閉鎖端側の外径が開口部7a側の端部の外径よりも小さく設定されたテーパー形状に形成されている。なお、採取用フィルター7の詳細についてはさらに後述する。

【0027】

導入管8は、ホルダー6と同じくガラスからなる管状の部材であり、採取用フィルター7の開口部7aに対して着脱可能である。すなわち、この導入管8は、一端に採取管2の端部を連結するための連結部13を有しており、また、他端が装着体9を貫通して採取用フィルター7の開口部7a内に着脱可能に挿入されている。

【0028】

装着体9は、採取用フィルター7をホルダー6内で支持するための第1支持体14と、導入管8を第1支持体14に対して装着するための第2支持体15とを有している。第1支持体14は、樹脂製または金属製の部材であり、採取用フィルター7の開口部7a側端部を支持するための穴部14aを有している。穴部14aの内周面には、螺旋溝14bが形成されている。第1支持体14は、その螺旋溝14bにより、ホルダー6の装着部11側の螺旋溝11aに螺旋止めされている。また、第1支持体14は、図3の左方向に突出する突出部16を有している。突出部16は、導入管8の先端部を挿入可能な貫通孔16aを有しており、また、外周面に螺旋溝16bが形成されている。

【0029】

一方、第2支持体15は、第1支持体14と同じく樹脂製または金属製の部材

であって内周面に螺旋溝15aが形成された蓋状に形成されており、導入管8を挿入するための貫通孔15bを有している。この第2支持体15は、貫通孔15bに導入管8が挿入された状態で、螺旋溝15aにより第1支持体14の突出部16の螺旋溝16bに螺旋止めされている。

【0030】

このような採取器3に装着された採取用フィルター7は、ホルダー6から取り外すことができる。この場合は、装着体9の第2支持体15を第1支持体14から取り外し、導入管8を採取用フィルター7から抜き取る。そして、第1支持体14をホルダー6から取り外すと、採取用フィルター7は第1支持体14により支持されつつホルダー6から取り出される。

【0031】

吸引器4は、排気流路20と吸引装置21とを備えている。排気流路20は、一端が管状ジョイント22を用いて採取器3の排出路12aに連結されており、また、採取器3側から順に冷却器23とトラップ24とをこの順に有している。吸引装置21は、排気流路20の他端に取付けられており、吸引ポンプ21aとガスマーテー21bとをこの順に有している。吸引ポンプ21aは、流量調節機能を有し、24時間以上連続的に使用できるものである。また、ガスマーテー21bは、試料ガスの流量を測定するためのものであり、10～401／分の範囲を0.11／分まで測定できるものである。

【0032】

次に、上述の採取器3において用いられる採取用フィルター7の詳細について説明する。採取用フィルター7は、流体通過性（この実施の形態では通気性）を有する、三次元網目構造の成形体と、当該成形体に保持された疎水性材料とを備えている。

【0033】

採取用フィルター7を構成する成形体は、纖維材料（纖維材料の群）と無機系結合材とを含んでいる。ここで用いられる纖維材料は、ダイオキシン類、その前駆体およびコプラナーP C B等の各種の塩素化有機化合物と実質的に化学反応しないものであり、例えば、ガラス纖維、アルミナ纖維（特に、活性アルミナ纖維

) およびシリカ纖維などである。これらの纖維材料は、それぞれ単独で用いられてもよいし、2種以上のものが併用されてもよい。なお、纖維材料の纖維径および比表面積は、特に限定されるものではない。

【0034】

但し、この纖維材料の平均アスペクト比（長さ／直径）は、10,000以下、特に、1,000～10,000が好ましい。纖維材料の平均アスペクト比が10,000を超える場合は、試料流体（試料ガス）の採取中に圧損が増大し、上述のJIS規格（JIS K 0311：1999）で規定されている等速吸引ができなくなる等のおそれがある。

【0035】

一方、この成形体に含まれる無機系結合材は、纖維材料同士を結合して纖維材料からなる群を一体化し、纖維材料からなる群に一定の成形形状を付与する性質を有するもの、すなわち、纖維材料からなる群を一定の成形形状に保持するバインダーとして機能するものである。この実施の形態においてより具体的には、纖維材料からなる群を、上述の採取用フィルター7の形状、すなわち一端が閉鎖された円筒状に設定するためのものである。

【0036】

ここで利用可能な無機系結合材は、上述の性能を有し、しかも纖維材料と同様に塩素化有機化合物と実質的に化学反応しないものであれば特に限定されるものではないが、吸着性能、特に塩素化有機化合物に対する吸着性能を有するものが好ましい。このような吸着性能を有する無機系結合材としては、例えば、アルミナ（特に、活性アルミナ）、ゼオライト、二酸化ケイ素（シリカ）、酸性白土およびアパタイトなどを挙げることができる。これらの無機系結合材は、それぞれ単独で用いられてもよいし、2種以上のものが併用されてもよい。また、無機系結合材は、形態が特に限定されるものではないが、通常は粒子状のものが用いられる。

【0037】

ここで、ゼオライトは、一般式 $X_mY_nO_{2n} \cdot sH_2O$ で示される含水アルミニケイ酸塩であり、一般式中、XはNa、CaまたはK等を、YはSi+A1をそ

れぞれ示しており、また、sは不定である。このようなゼオライトとしては、合成ゼオライトを用いるのが好ましい。

【0038】

上述のような無機系結合材のうち、本発明では、タールの吸着性を有するものを用いるのが特に好ましい。このような特徴を有する無機系結合材を用いた場合、採取用フィルター7は、例えば試料ガス中に含まれる一酸化炭素に由来して生成するタール（詳細は後述）を効果的に吸着することができ、そのようなタール中に溶け込んだダイオキシン類やコプラナーP C B等の各種の塩素化有機化合物をもより確実に捕捉して採取することができる。なお、タールを吸着可能な無機系結合材としては、アルミナ、ゼオライトおよび二酸化ケイ素を例示することができる。アルミナとしては、活性アルミナを用いるのが特に好ましい。これらのタールを吸着可能な無機系結合材は、それぞれ単独で用いられてもよいし、2種以上のものが併用されてもよい。

【0039】

上述のような纖維材料と無機系結合材とを含む成形体は、嵩密度が0.1～1g／cm³に設定されているのが好ましく、0.3～0.7g／cm³に設定されているのがより好ましい。成形体の嵩密度が0.1g／cm³未満の場合は、試料ガス中に含まれる塩素化有機化合物の一部が採取用フィルター7を通過してしまう場合があり、試料ガス中に含まれる塩素化有機化合物を実質的に漏れなく採取するのが困難になる場合がある。逆に、嵩密度が1g／cm³を超える場合は、採取用フィルター7において、試料ガス中に含まれる粒子状物を捕捉した際に圧損が高まるおそれがあり、その結果、試料ガスが通過しにくくなつて上述のJ I S規格（J I S K 0311：1999）で規定されている等速吸引ができなくなる可能性がある。また、採取用フィルター7により採取された塩素化有機化合物を抽出するための後述する抽出操作において、抽出率の低下を招くおそれがある。

【0040】

一方、上述の成形体に保持される疎水性材料は、塩素化有機化合物と実質的に化学反応しないものであり、しかも、上述の纖維材料および無機系結合材よりも

疎水性の高いものであれば特に限定されるものではないが、吸着性能、特に塩素化有機化合物に対する吸着性能を有するものが好ましい。このような吸着性能を有する疎水性材料としては、例えば、活性炭、グラファイトおよびスチレン-ジビニルベンゼン共重合体（例えば、米国のシグマーアルドリッヂ社（Sigma-Aldrich Corporation）の商品名“XAD-2”）からなる群から選択された少なくとも1種のものが好ましい。また、疎水性材料として、アルキルシリル基を有する材料、例えば、炭素数が8～18個のアルキルシリル基を有する材料を用いることもできる。さらに、疎水性材料は、形態が特に限定されるものではないが、通常は粉末状や粒子状のものが用いられる。

【0041】

上述の疎水性材料は、通常、上述の成形体の0.01～10.0重量%、好ましくは0.05～5.0重量%保持されているのが好ましい。疎水性材料の量が0.01重量%未満の場合は、試料ガス中の水分量が高い場合において、採取用フィルター7を用いて当該試料ガス中に含まれる塩素化有機化合物を実質的に漏れなく採取するのが困難になる可能性がある。逆に、疎水性材料の量が10.0重量%を超える場合は、採取用フィルター7において、試料ガス中に含まれる粒子状物を捕捉した際に圧損が高まるおそれがあり、その結果、試料ガスが通過にくくなつて上述のJIS規格（JIS K 0311：1999）で規定されている等速吸引ができなくなる可能性がある。また、採取用フィルター7により採取された塩素化有機化合物を抽出するための後述する抽出操作において、抽出が困難になり、抽出率の低下を招くおそれがある。

【0042】

なお、採取用フィルター7として好ましいものは、纖維材料として活性アルミニナ纖維を用い、また、無機系結合材として粒子状の活性アルミナを用いた成形体に対し、疎水性材料として粉末状活性炭を保持させたものである。特に、成形体として、嵩密度が0.3～0.7g/cm³の範囲のものを用いたものが最も好ましい。

【0043】

上述のような採取用フィルター7は、通常、上述の成形体を製造し、この成形

体に対して疎水性材料を保持させると製造することができる。具体的には、先ず、上述の纖維材料と無機系結合材とを含む成形材料を調製する。ここでは、無機系結合材を水中に分散した分散液を調製し、この分散液中に纖維材料を加えて無機系結合材と纖維材料とを均一に混合する。この際、纖維材料と無機系結合材との混合割合は、目的とする成形体の嵩密度が上述の範囲になるよう適宜調整するのが好ましい。

【0044】

次に、得られた成形材料を所定の形状、すなわち、一端が閉鎖された円筒状に成形し、成形物を得る。ここでの成形方法としては、周知の各種の成形方法、例えば湿式金型成形法などを採用することができる。そして、得られた成形物を熱処理して焼結すると、目的とする成形体が得られる。なお、焼結時の温度は、特に限定されるものではないが、纖維材料および無機系結合材の一方または両方としてアルミナを用いる場合は、当該アルミナを活性化して活性アルミナ化することができる温度範囲、具体的には150～700℃に設定するのが好ましい。

【0045】

上述のようにして製造される成形体は、さらに、無機系結合材を水中に分散した水系分散液中に浸漬し、その後乾燥処理されてもよい。成形体に対してこのような処理を施すと、成形体中に無機系結合材が含浸され、無機系結合材をより多く含む成形体を製造することができる。また、このような処理により、成形体の嵩密度を上述の好ましい範囲に調整することもできる。このような成形体は、結果的に無機系結合材を多く含むことになるため、無機系結合材として上述のタル吸着能を有するものを用いた場合、試料ガス中に後述する未燃分の炭化水素類や一酸化炭素が多く含まれる場合であっても、試料ガス中に含まれる塩素化有機化合物をより効果的に漏れなく捕捉することができる。なお、成形体の乾燥方法は、特に限定されるものではないが、通常は、成形体を150～700℃程度で加熱処理して水分を除去する方法を採用するのが好ましい。

【0046】

次に、得られた成形体に対し、疎水性材料を保持させる。そのための方法は、特に限定されるものではないが、例えば、上述のホルダー6を用いて疎水性材料

を保持させる方法がある。この方法では、上述の工程で得られた成形体をホルダー6内に装填すると共に分岐路12bを閉鎖し、排出路12a側に吸引ポンプなどの吸引装置を接続する。そして、吸引装置を作動させてホルダー6内を吸引し、同時に導入管8内に疎水性材料を供給する。これにより、導入管8内に供給された疎水性材料は、成形体方向に吸引され、成形体の主として内周面側から厚さ方向に保持される。この際、導入管8から供給する疎水性材料の量は、成形体に対する割合が上述の範囲になるよう設定するのが好ましい。

【0047】

次に、上述の採取装置1の使用方法、すなわち、上述の採取装置1を用いた塩素化有機化合物の採取方法について説明する。ここでは、廃棄物を焼却処理するための焼却施設の空間内、例えば煙道内を流れる排気ガスから試料ガスを採取し、その試料ガス中に含まれるダイオキシン類やコプラナーP C Bなどの各種の塩素化有機化合物を採取する場合について説明する。この場合、図1に示すように、採取装置1の採取管2の先端部を煙道25に設けられた試料採取口25aから煙道25内に挿入する。この際、採取管2にパッキン26を装着し、採取管2と試料採取口25aとの隙間を気密に封止する。また、採取器3の分岐路12b内に温度計や熱電対などの測温器27を装着する。

【0048】

この状態で吸引ポンプ21aを作動させ、煙道25内を流れる排気ガスの一部を試料ガスとして採取管2内に等速吸引する。この際、J I S Z 8808に準じて煙道25内を流れる排気ガスの温度、流速、圧力、水分量などを測定して等速吸引量を計算し、その計算結果に基づいて吸引ポンプ21aによる吸引流量を調整する。ここで設定した流量は、その結果をガスマーテー21bにより適宜監視し、等速吸引状態が継続されるように適宜調節するのが好ましい。

【0049】

採取管2内に流れ込んだ試料ガスは、冷却器5により冷却され、通常、ダイオキシン類の生成温度以下、例えば120℃以下の温度に冷却される。これにより、採取管2内では、ダイオキシン類の新たな発生が防止される。

【0050】

冷却された試料ガスは、採取管2から採取器3の導入管8を経由して採取用フィルター7内に流入する。採取用フィルター7内に流入した試料ガスは、図3に矢印で示すように、採取用フィルター7を通過してホルダー6の本体部10内に流出し、さらに排出路12aを経由して吸引器4に向けて流れる。この際、試料ガス中に含まれる、各種の煤塵、並びに粒子状態およびガス状態の両形態の、ダイオキシン類やコプラナーPCB等の各種の塩素化有機化合物は、採取用フィルター7を構成する成形体に含まれる上述の纖維材料および無機系結合材並びに疎水性材料により同時に捕捉され、試料ガス中から採取される。

【0051】

ところで、試料ガス中に未燃分の炭化水素類や一酸化炭素(CO)等の炭素化合物が多く含まれる場合、試料ガス中には当該炭素化合物に由来するタールが生成し易い。このタールは、ダイオキシン類やコプラナーPCBをはじめとする各種の塩素化有機化合物を溶解して内部に取り込む場合が多い。このため、採取用フィルター7として、タール吸着性能を有する無機系結合材を用いていないもの、例えば、上述の纖維材料をセルロース系バインダーなどの有機系バインダーを用いて成形した成形体からなるものを用いた場合、当該フィルターは試料ガス中で生成したタールを効果的に捕捉することができず、結果的に試料ガス中に含まれるタールの一部が当該フィルターを通過して外部に排出されてしまう可能性がある。すなわち、当該一部のタールと共に、そこに溶解した塩素化有機化合物がフィルターにより採取されずに外部に排出される可能性がある。これは、本発明者等が本発明に至る過程において見い出した現象であり、未燃分の炭素化合物の多少を判断する指標として、一酸化炭素を用いて判定した場合、特に、試料ガス中に含まれる一酸化炭素濃度が150ppmを超える場合にこのようなタールの通過が顕著に起こり得ることが判明している。

【0052】

これに対し、この実施の形態に係る採取用フィルター7は、上述のような纖維材料とタール吸着能を有する無機系結合材とを含む成形体からなる場合、たとえ試料ガス中の未燃分の炭素化合物濃度が高濃度であっても(例えば、試料ガス中の一酸化炭素濃度が150ppmを超えるような場合であっても)、試料ガス中

に含まれるタールをも実質的に漏れなく捕捉することができる。つまり、この採取用フィルター7は、試料ガス中の未燃分の炭素化合物濃度の高低に拘わらず、試料ガス中に含まれる、粒子状態およびガス状態の両形態のダイオキシン類やコプラナーP C B等の各種の塩素化有機化合物を実質的に漏れなく捕捉して採取することができる。

【0053】

また、試料ガスは、煙道25内において水の噴霧により急速に冷却された場合、水分量が高まる場合がある。しかし、このような場合であっても、採取用フィルター7は、上述のような疎水性材料を含んでいるため、試料ガス中に含まれる、粒子状態およびガス状態の両形態のダイオキシン類やコプラナーP C B等の各種の塩素化有機化合物を実質的に漏れなく捕捉して採取することができる。

【0054】

上述のようにして、煤塵並びに粒子状態およびガス状態の各種の塩素化有機化合物が採取用フィルター7により実質的に漏れなく取り除かれた試料ガスは、続けて排出路12aから吸引器4に向けて流れる。この際、排出路12aを流れる試料ガス温度は、分岐路12bに装着された測温器27により測定され、管理される。

【0055】

排出路12aから排出された試料ガスは、排気流路20内に流れ込み、その冷却器23によりさらに冷却される。これにより、試料ガス中に含まれる水分が凝縮し、トラップ24内に貯留される。このようにして水分が取り除かれた試料ガスは、吸引ポンプ21aを経由してガスマーター21bから外部に排出される。なお、このような採取装置1による試料ガス、すなわち排気ガスの採取は、通常、塩素化有機化合物の検出限界値から想定される排気ガス量に相当する時間（通常、排気ガス1～3Nm³/3～4時間）実施される。

【0056】

このようにして採取された試料ガス（排気ガス）中に含まれる塩素化有機化合物濃度を分析する場合は、煙道25から採取装置1を取り外し、また、採取装置1から採取器3を分離する。さらに、分離された採取器3から、採取用フィルタ

ー7を取り出す。

【0057】

次に、採取管2、導入管8およびホルダー6内を溶媒を用いて洗浄し、その際の洗浄液を確保する。また、採取器3の採取用フィルター7により捕捉された塩素化有機化合物を溶媒で抽出する。ここで、採取用フィルター7に捕捉された塩素化有機化合物の抽出操作は、例えば通常のソックスレー抽出器を用いて実施することができるが、この採取用フィルター7は、上述のような小型サイズに設定されている場合は高速抽出器のセル内に収容することができ、当該高速抽出器を用いて速やかに抽出操作を実施することができる。また、当該採取用フィルター7は、それを構成する成形体の嵩密度が上述の範囲に設定されており、また、疎水性材料の含有量が上述の範囲に設定されている場合、抽出時間を短縮するための特殊な抽出条件を設定する必要がなく、捕捉した塩素化有機化合物を短時間で速やかに溶媒中に溶出させることができる。

【0058】

塩素化有機化合物を分析する際は、上述の洗浄液および上述のような抽出操作により得られた抽出液を合せ、これに対して分析操作を実施する。この場合の分析方法としては、例えば、厚生省生活衛生局水道環境部環境整備課編「廃棄物処理におけるダイオキシン類標準測定分析マニュアル」（平成9年3月：財団法人廃棄物研究財団発行）に記載された方法、または日本工業規格JIS K 0311:1999（平成11年9月20日制定）に規定された方法に従い、ガスクロマトグラフ質量分析法（GC/MS法）を用いた方法を採用することができる。

【0059】

採取装置1を用いて別の試料ガスを採取する場合は、例えば、採取器3を新たなものに交換する。この場合、採取装置1は、採取管2のみを十分に洗浄するだけで次の試料ガス採取用に供することができるので、試料ガス採取前の準備作業が従来のインピンジャーを用いたものに比べて格段に軽減され、試料ガス採取に要する時間を大幅に短縮することができ、また、試料ガス採取に要するコストを大幅に低減することができる。また、この採取装置1、特に採取器3は、従来の

複雑な採取装置に比べて構成が簡素であるため、取扱いや持ち運びが容易である。このため、この採取装置1を用いれば、従来のインピンジャーを用いた大型の採取装置が設置しにくい煙道等に対しても、容易に試料ガスの採取作業を実施することができる。

【0060】

なお、一度使用された採取器3は、ホルダー6と導入管8とを十分に洗浄し、採取用フィルター7を新たなものに取り替えると、繰返して再利用することができる。

【0061】

[他の実施の形態]

(1) 上述の実施の形態では、採取用フィルター7として円筒状のものを用いたが、本発明はこれに限定されない。例えば、採取用フィルター7が円柱状や円盤状に形成されている場合も本発明を同様に実施することができる。

【0062】

(2) 上述の実施の形態では、廃棄物の焼却炉から排出される排気ガス(試料ガス)中に含まれるダイオキシン類やコプラナーPCBなどの塩素化有機化合物を採取する場合について説明したが、本発明の採取用フィルター、採取器および採取方法は、排気ガス以外の流体中に含まれる塩素化有機化合物を採取する場合にも同様に利用することができる。例えば、環境大気中に含まれる塩素化有機化合物、並びに工場廃水、海水、淡水および水道水等の水中に含まれる塩素化有機化合物を採取する場合についても本発明の採取用フィルター等を同様に利用することができる。

【0063】

なお、工場廃水等の水中に含まれる塩素化有機化合物を採取する場合、採取試料は液体試料となる。この場合、当該液体試料は、粒子状態、気泡状態(すなわち気液混合状態)および溶解状態(すなわち液中に溶解した状態)の様々な状態の各種の塩素化有機化合物を含む可能性があるが、本発明の採取用フィルターは、このような様々な状態の各種の塩素化有機化合物を同時に捕捉して液体試料中から採取することができる。

【0064】**【実施例】**

粒子状のアルミナ（無機系結合材）を約20重量%含むアルミナ水分散液を調製し、このアルミナ水分散液中に纖維材料として平均纖維径が $6\text{ }\mu\text{m}$ で平均アスペクト比が2,000のアルミナ纖維（ γ -アルミナ72重量%とシリカ28重量%とを含むもの）を加えて混合した。得られた成形材料を一端が閉鎖された円筒状に成形し、200℃で焼結した。これにより、開口端側の外径が19mm、閉鎖端側の外径が18mm、厚さが5mmおよび長さが120mmにそれぞれ設定された、重量が8.5gで嵩密度が 0.38 g/cm^3 の通気性を有する円筒状の成形体を得た。なお、この成形体中に含まれるアルミナ纖維および粒子状のアルミナの量は、それぞれ5.7gおよび2.8gであった。

【0065】

ここで得られた成形体の一部の電子顕微鏡写真を図5に示す。図5より、この成形体は、アルミナ纖維同士が無機系結合材である粒子状のアルミナにより結合されて形成された、通気性を有する微細な網状構造（三次元網目構造）を有することがわかる。

【0066】

次に、得られた成形体を、粒子状アルミナが20重量%分散されている水分散液中にさらに浸漬した後に取り出し、200℃で熱処理して乾燥した。これにより、重量が12.8g、嵩密度が 0.6 g/cm^3 の成形体を得た。

【0067】

次に、得られた成形体を採取用フィルター7の代わりに用いて採取器3を作成し、当該採取器3の分岐路12bを閉鎖して排出路12a側に吸引ポンプを接続した。そして、吸引ポンプを作動させてホルダー6内を吸引し、同時に導入管8内に粉末状活性炭（クラレケミカル株式会社の商品名“クラレコールPK-DN”）を導入した。これにより、成形体の主として内周面側から厚さ方向に12mgの粉末状活性炭を保持させ、採取用フィルター7を得た。

【0068】

ここで得られた採取用フィルター7の一部の電子顕微鏡写真を図6に示す。図

6より、この採取用フィルター7は、上述の成形体の主として内周面側に粉末状活性炭が保持された構造を有することがわかる。

【0069】

得られた採取用フィルター7を用いて上述の実施の形態に係る塩素化有機化合物の採取器3を作成し、この採取器3を用いて上述の実施の形態に係る採取装置1を構成した。そして、廃棄物を焼却処理中の焼却炉の煙道から、この採取装置1を用いて水分量および平均一酸化炭素濃度がそれぞれ異なる数種類の試料ガス（排気ガス）を採取し、当該試料ガス中に含まれるダイオキシン類およびコポラーナーPCBなどの各種の塩素化有機化合物を採取した。この際、採取装置1の後段に、JIS K 0311：1999に例示された、インピングジャーを備えた試料ガス採取装置（以下、「JIS法例示装置」と称す）を接続し、採取装置1を通過した試料ガスがJIS法例示装置を通過した後に排出されるようにした。なお、上記の水分量は、排気ガス中に含まれる水蒸気の割合（体積百分率（%））であり、JIS Z 8808：1995（平成7年3月1日制定）「排ガス中のダスト濃度の測定方法」において規定されたものである。また、試料ガスの採取条件は、JIS K 0311：1999に規定された条件に従った。

【0070】

採取装置1およびJIS法例示装置によりそれぞれ採取された塩素化有機化合物をJIS K 0311：1999に準じた方法に従って抽出し、同じJISに規定された分析方法に従って定量分析した。そして、採取装置1により採取された塩素化有機化合物量（A）とJIS法例示装置により採取された塩素化有機化合物量（B）とをそれぞれ求め、採取装置1により採取された塩素化有機化合物の捕集率（%）を下記の式に従って求めた。結果を図7および図8に示す。図7は、試料ガスの水分量と捕集率との関係を示し、また、図8は、試料ガスの平均一酸化炭素濃度と捕集率との関係を示している。

【0071】

【数1】

$$\text{捕集率} (\%) = A / (A + B) \times 100$$

【0072】

図7および図8によると、採取装置1は、上述の採取用フィルター7を備えているため、試料ガス中の平均一酸化炭素濃度の高低に拘わらず（すなわち試料ガス中の未燃の炭素化合物の濃度が高いにも拘わらず）、また、試料ガス中の水分量の大小に拘わらず、試料ガス中に含まれる粒子状態およびガス状態の両形態の、ダイオキシン類やコプラナーP C Bをはじめとする各種の塩素化有機化合物を実質的に漏れなく採取することができる。

【0073】**【発明の効果】**

本発明に係る塩素化有機化合物の採取用フィルターは、纖維材料と無機系結合材とを含む成形体と、当該成形体に保持された、塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料とを備えているため、流体中に含まれる粒子状態およびガス状態の両方の形態のダイオキシン類やコプラナーP C Bをはじめとする各種の塩素化有機化合物を同時に捕捉して採取し、しかも採取した塩素化有機化合物を容易に抽出することができる。

【0074】

本発明に係る製造方法は、纖維材料と無機系結合材とを含む成形材料を成形して焼結し、これにより得られる成形体に対して塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料を保持させているため、流体中に含まれる粒子状態およびガス状態の両形態の、ダイオキシン類やコプラナーP C Bをはじめとする各種の塩素化有機化合物を同時に捕捉して採取することができ、しかも採取した塩素化有機化合物を容易に抽出することができる採取用フィルターを製造することができる。

【0075】

また、本発明に係る塩素化有機化合物の採取器は、本発明に係る採取用フィルターを用いているため、輸送管内を流れる流体中に含まれる粒子状態およびガス

状態の両形態の、ダイオキシン類やコプラナーP C Bをはじめとする各種の塩素化有機化合物を同時に捕捉して採取することができる。

【0076】

さらに、本発明に係る塩素化有機化合物の採取方法は、輸送管内を流れる流体を本発明に係る採取用フィルターに通過させているため、当該流体中に含まれる粒子状態およびガス状態の両形態の、ダイオキシン類やコプラナーP C Bをはじめとする各種の塩素化有機化合物を同時に捕捉して採取することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施の一形態に係る採取器が採用された塩素化有機化合物の採取装置の概略構成図。

【図 2】

前記採取器の正面図。

【図 3】

前記採取器の縦断面図。

【図 4】

図2のIV-IV断面図。

【図 5】

実施例で得られた成形体の一部の電子顕微鏡写真。

【図 6】

実施例で得られた採取用フィルターの一部の電子顕微鏡写真。

【図 7】

実施例において、試料ガスの水分量と捕集率との関係を調べた結果を示すグラフ。

【図 8】

実施例において、試料ガスの平均一酸化炭素濃度と捕集率との関係を調べた結果を示すグラフ。

【符号の説明】

3 採取器

6 ホルダー

7 採用用フィルター

7 a 開口部

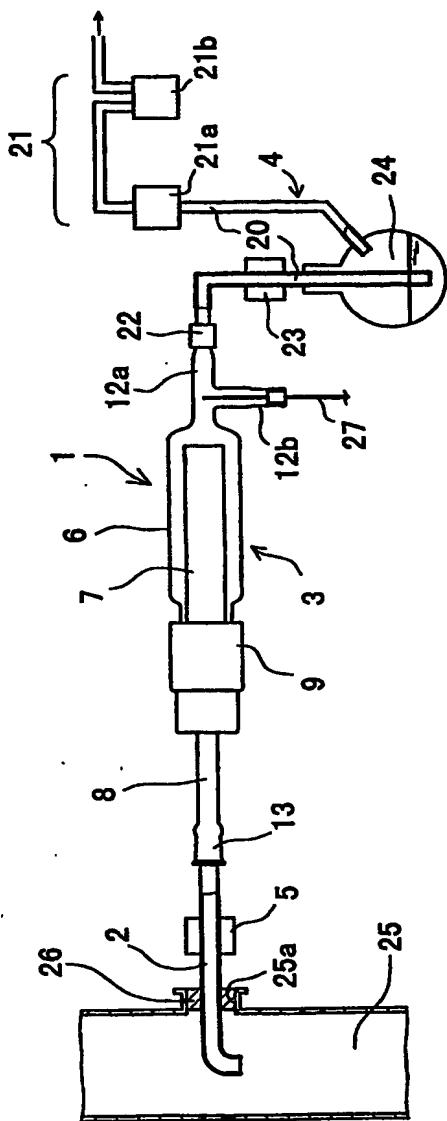
8 導入管

12 a 排出路

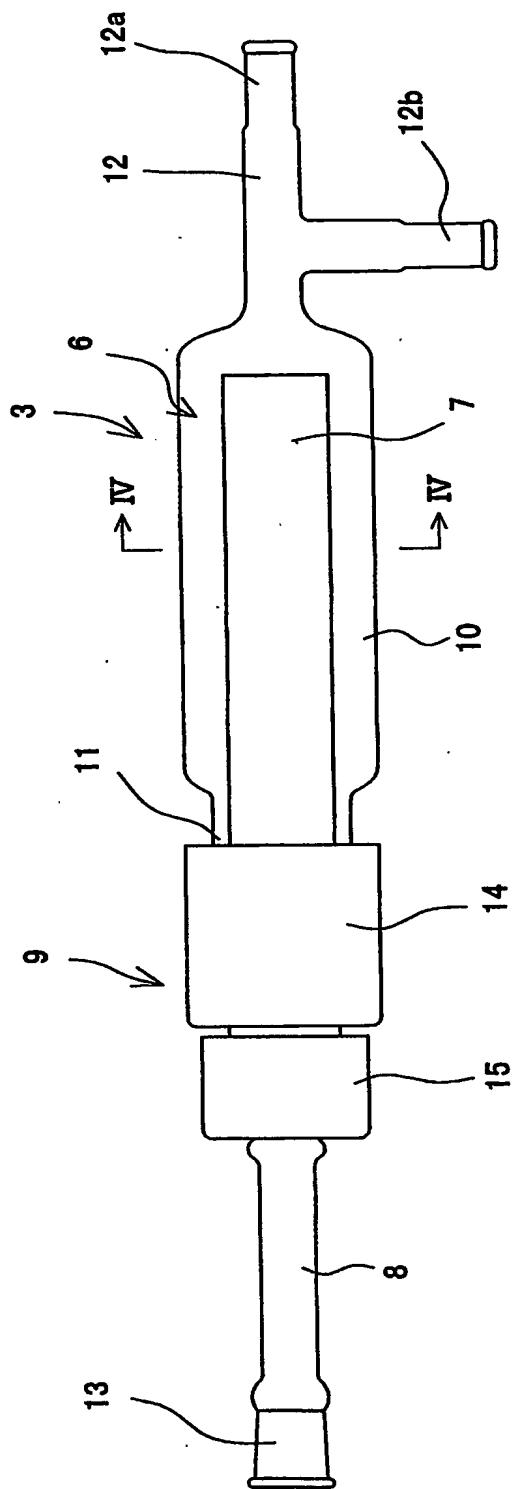
【書類名】

図面

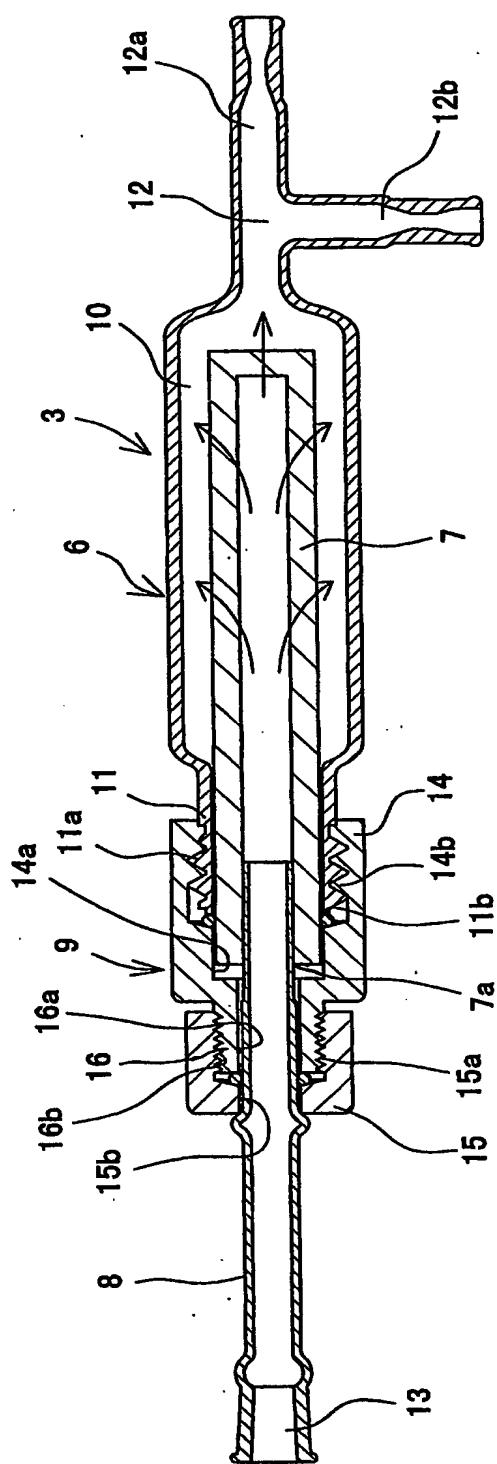
【図1】



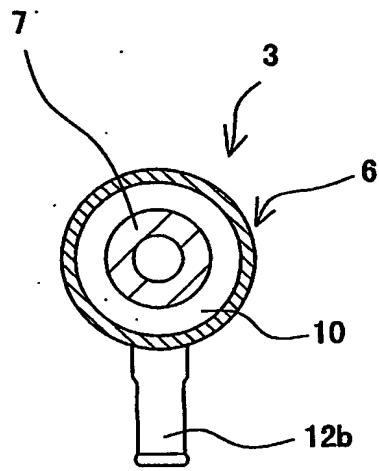
【図2】



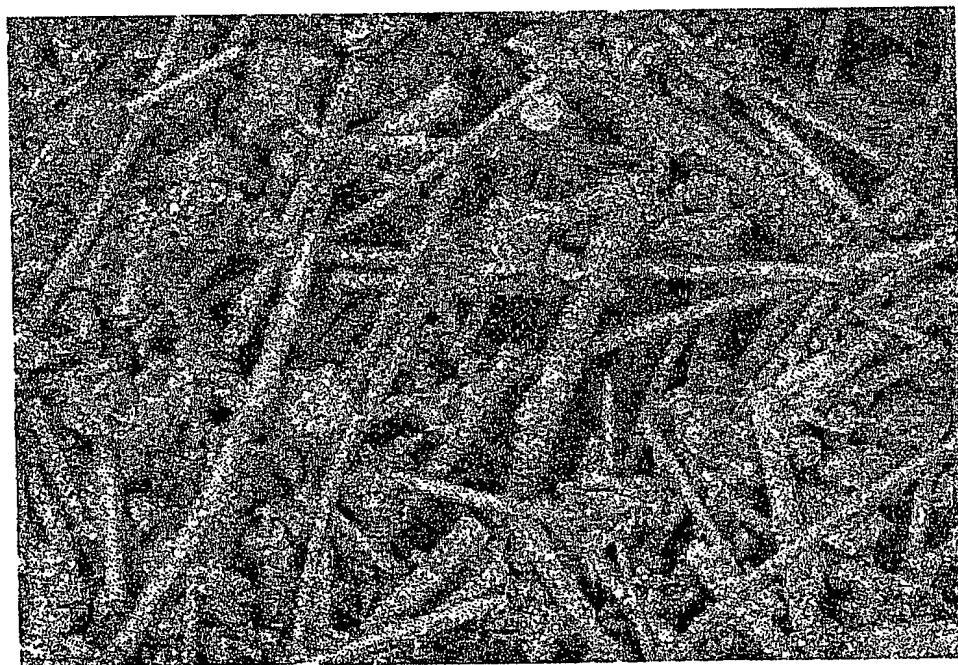
【図3】



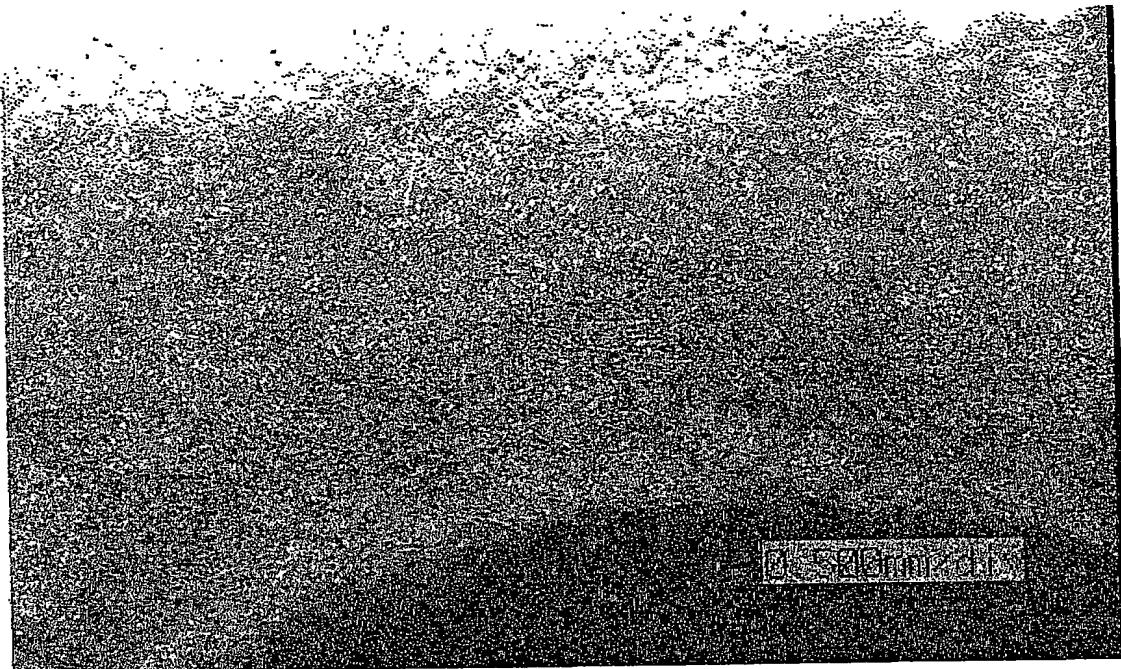
【図4】



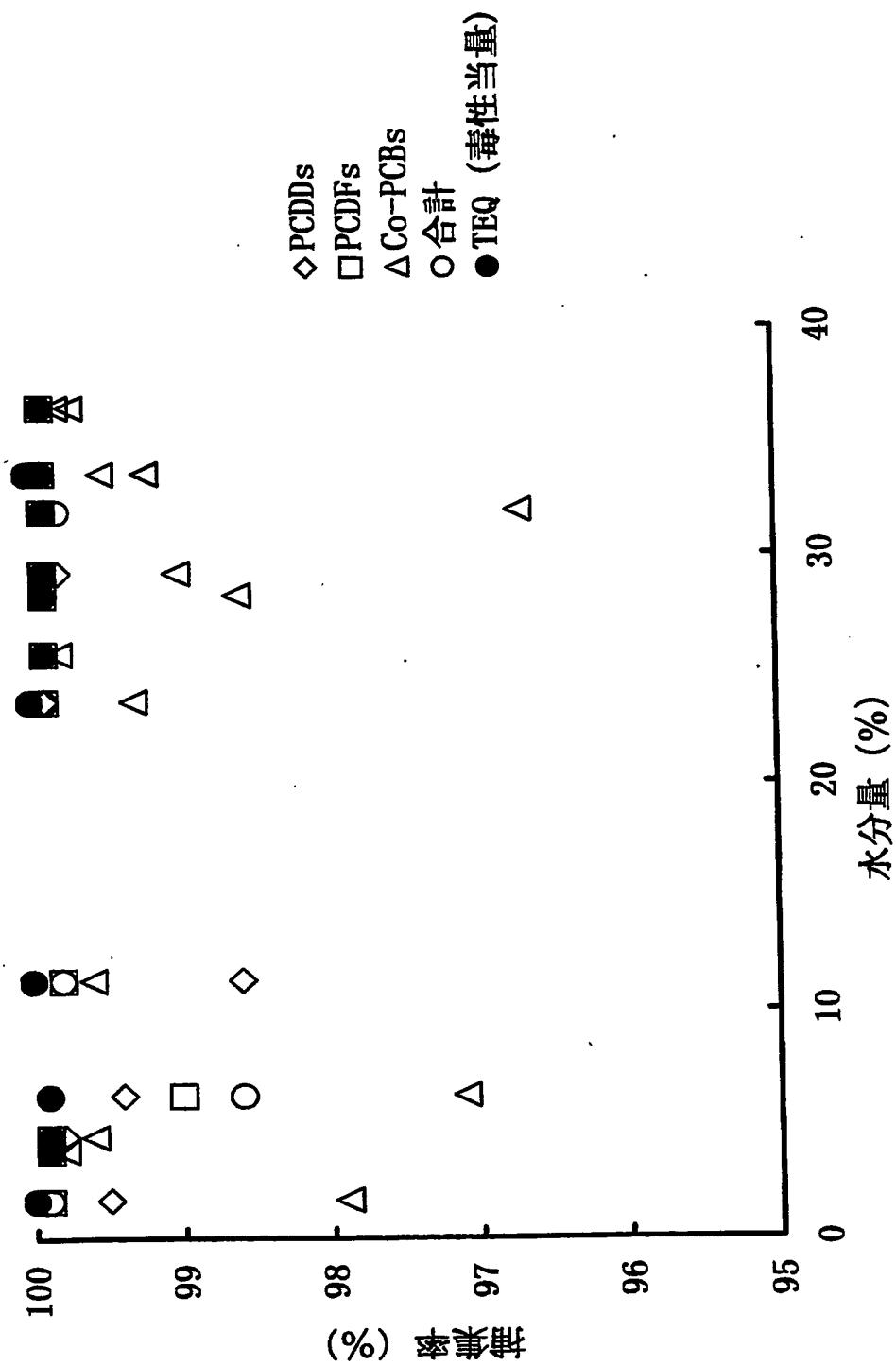
【図5】



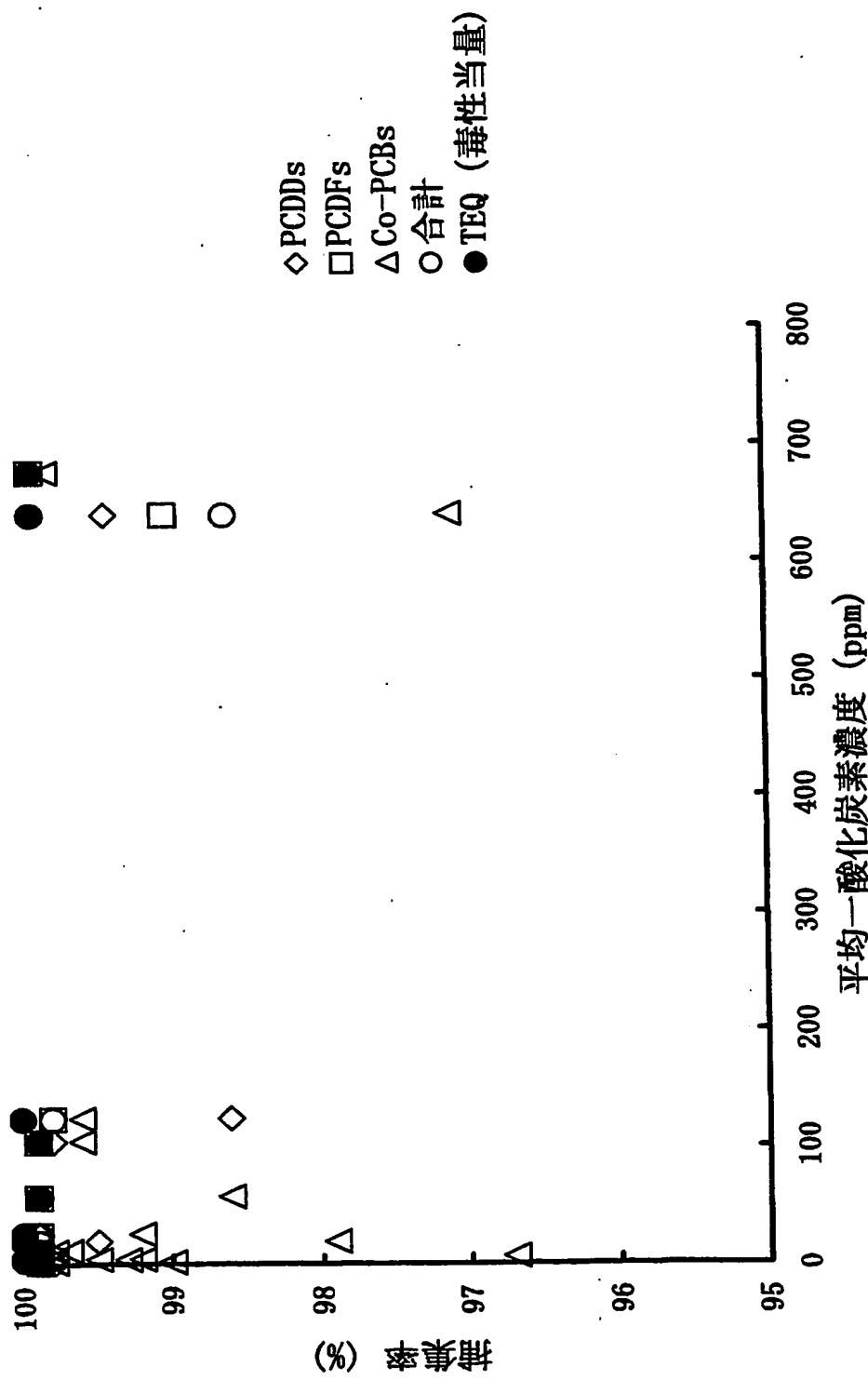
【図 6】



【図 7】



【図8】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 流体中に含まれる粒子状態およびガス状態の両方の形態の各種の塩素化有機化合物を同時に捕捉して採取し、しかも採取した塩素化有機化合物を容易に抽出できるようにする。

【解決手段】 採取器3は、排出路12aを有するホルダー6内に配置された採取用フィルター7を有している。採取用フィルター7は、繊維材料と、当該繊維材料同士を結合するための無機系結合材とを含む流体通過性の成形体と、当該成形体に保持された、塩素化有機化合物の吸着性を有する疎水性材料とを備えている。煙道25から採取管2および導入管8を経由してホルダー6内に流入する、各種の塩素化有機化合物を含む試料ガスは、そこに含まれる粒子状態およびガス状態の両方の形態の、ダイオキシン類やコプラナーPCB等の各種の塩素化有機化合物が採取用フィルター7を通過する際に捕捉されて採取され、排出路12aから外部に排出される。

【選択図】 図1

特願2002-210585

出願人履歴情報

識別番号 [000175272]

1. 変更年月日 1990年 8月25日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛媛県松山市堀江町7番地
氏 名 三浦工業株式会社

特願2002-210585

出願人履歴情報

識別番号 [000000284]

1. 変更年月日 1990年 8月 8日

[変更理由] 新規登録

住 所 大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号
氏 名 大阪瓦斯株式会社

2. 変更年月日 2003年 4月 3日

[変更理由] 名称変更

住 所 大阪府大阪市中央区平野町四丁目1番2号
氏 名 大阪瓦斯株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.